

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日            2 0 0 3 年   3 月 1 4 日  
Date of Application:

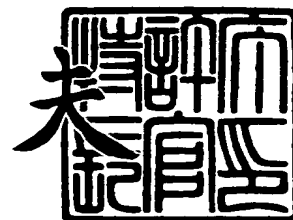
出 願 番 号            特 願 2 0 0 3 - 0 7 0 3 5 8  
Application Number:  
[ST. 10/C]:            [ J P 2 0 0 3 - 0 7 0 3 5 8 ]

出 願 人            松下電器産業株式会社  
Applicant(s):

2 0 0 3 年 1 1 月 2 8 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康



出証番号   出証特 2 0 0 3 - 3 0 9 8 6 7 7

【書類名】 特許願

【整理番号】 2033740374

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H01M 8/00

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 小原 英夫

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 富澤 猛

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 羽藤 一仁

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 日下部 弘樹

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 安本 栄一

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 柴田 礎一

**【発明者】**

**【住所又は居所】** 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

**【氏名】** 笠原 英男

**【発明者】**

**【住所又は居所】** 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

**【氏名】** 松本 敏宏

**【特許出願人】**

**【識別番号】** 000005821

**【氏名又は名称】** 松下電器産業株式会社

**【代理人】**

**【識別番号】** 100072431

**【弁理士】**

**【氏名又は名称】** 石井 和郎

**【選任した代理人】**

**【識別番号】** 100117972

**【弁理士】**

**【氏名又は名称】** 河崎 眞一

**【手数料の表示】**

**【予納台帳番号】** 066936

**【納付金額】** 21,000円

**【提出物件の目録】**

**【物件名】** 明細書 1

**【物件名】** 図面 1

**【物件名】** 要約書 1

**【包括委任状番号】** 0114078

**【プルーフの要否】** 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 高分子電解質型燃料電池

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 高分子電解質膜、前記電解質膜を挟むカソードおよびアノード、カソードに酸化剤ガスを供給するガス流路を有するカソード側セパレータ、並びにアノードに燃料ガスを供給するガス流路を有するアノード側セパレータからなる単位セルを積層したセルスタックを具備し、前記セルスタックが、カソード側セパレータのガス流路に連なる一対のマニホールド孔、およびアノード側セパレータのガス流路に連なる一対のマニホールド孔を有する高分子電解質型燃料電池であって、

(a) 前記電解質膜とカソード側セパレータとの間に介在し、前記酸化剤ガスの流路およびこれに連なる一対のマニホールド孔を囲むとともに前記燃料ガス用マニホールド孔を囲むカソード側ガスケット、並びに (b) 前記電解質膜とアノード側セパレータとの間に介在し、前記燃料ガスの流路およびこれに連なる一対のマニホールド孔を囲むとともに前記酸化剤ガス用マニホールド孔を囲むアノード側ガスケットを有し、(c) 前記アノード側ガスケットが平板状であり、前記カソード側ガスケットが、前記カソードを囲む部分において、内側が薄く、外側が厚くなる断面をもつくさび型であることを特徴とする高分子電解質型燃料電池。

【請求項 2】 前記カソード側ガスケットが、(1) 前記酸化剤ガスの流路およびこれに連なる一対のマニホールド孔を囲んで閉ループを構成する帯状の第 1 の部片、(2) 前記一対の燃料ガス用マニホールド孔をそれぞれ囲んで閉ループを構成する一対の帯状の第 2 の部片、および (3) 第 1 の部片および第 2 の部片を連結する帯状の第 3 の部片からなり、(4) 第 1 の部片が内側が薄く、外側が厚くなる断面をもつくさび型であり、第 2 の部片が内側が厚く、外側が薄くなる断面をもつくさび型である請求項 1 記載の高分子電解質型燃料電池。

【請求項 3】 前記ガスケットが、樹脂フィルム、前記樹脂フィルムのセパレータ側に設けられた粘着剤の層、および前記粘着剤の層と反対側に設けられたゴム層の三層構造からなる請求項 1 または 2 記載の高分子電解質型燃料電池。

【請求項 4】 前記カソード側ガスケットの第 1 の部片とカソードとの間に生じる片側クリアランス  $c_1$  とそのクリアランス部の水力直径  $d$  が次式 (1) および (2) :

$$d < (D \times l \times P) / 0.54L \quad (1)$$

$$0.25\text{ mm} < c_1 \quad (2)$$

ただし、

$l$  : 片側クリアランス部の長さ

$d$  : 片側クリアランス部の水力直径

$L$  : カソード側セパレータの 1 パス当たりのガス流路の長さ

$D$  : カソード側セパレータの 1 パス当たりのガス流路の水力直径

$P$  : カソード側セパレータ当たりのガス流路のパス数

水力直径 = 断面積 ÷ 断面積周長 × 4

を満たすことを特徴とする請求項 2 記載の高分子電解質型燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、ポータブル電源、電気自動車用電源、家庭内コージェネレーションシステム等に使用される固体高分子電解質を用いた燃料電池に関する。

【0002】

【従来の技術】

固体高分子電解質を用いた燃料電池は、反応ガスである水素を含有する燃料ガスと、空気など酸素を含有する酸化剤ガスとを、電気化学的に反応させることで、電力と熱とを同時に発生させるものである。この燃料電池は、基本的には、水素イオンを選択的に輸送する高分子電解質膜、および前記高分子電解質膜を挟む一対の電極、すなわちカソードおよびアノードからなる。前記の電極は、白金金属触媒を担持したカーボン粉末を主成分とし、前記高分子電解質膜に接する触媒層、および触媒層の外面に形成された、通気性と電子導電性を併せ持つ拡散層

からなる。

#### 【0003】

供給される反応ガスが外にリークしたり、二種類の反応ガスが互いに混合したりしないように、電極の周囲には高分子電解質膜を挟んでガスシール材やガスケットが配置される。このシール材やガスケットは、電極及び高分子電解質膜と一体化してあらかじめ組み立てられる。これをMEA（電解質膜電極接合体）と呼ぶ。MEAの外側には、これを機械的に固定するとともに、隣接したMEAを互いに電氣的に直列に接続するための導電性のセパレータ板が配置される。セパレータ板のMEAと接触する部分には、電極面に反応ガスを供給し、生成ガスや余剰ガスを運び去るためのガス流路が形成される。ガス流路はセパレータ板と別に設けることもできるが、セパレータの表面に溝を設けてガス流路とする方式が一般的である。

#### 【0004】

この溝に反応ガスを供給するためは、反応ガスを供給する配管を、使用するセパレータの枚数に分岐し、その分岐先を直接セパレータの溝につなぎ込む配管治具が必要となる。この治具をマニホールドと呼び、上記のような反応ガスの供給配管から直接つなぎ込むタイプを外部マニホールドと呼ぶ。このマニホールドには、構造をより簡単にした内部マニホールドと呼ぶ形式のものがある。内部マニホールドとは、ガス流路を形成したセパレータ板に、貫通した孔を設け、ガス流路の出入り口をこの孔まで通し、この孔から直接反応ガスを供給するものである。

#### 【0005】

燃料電池は運転中に発熱するので、電池を良好な温度状態に維持するために、冷却水等で冷却する必要がある。通常、1～3セル毎に冷却水を流す冷却部がセパレータとセパレータとの間に挿入されるが、セパレータの背面に冷却水流路を設けて冷却部とする場合が多い。これらのMEAとセパレータおよび冷却部を交互に重ねていき、10～200セル積層した後、集電板と絶縁板を介して端板でこれを挟み、締結ボルトで両端から固定し、まわりを断熱材で囲むのが一般的な積層電池の構造である。

## 【0006】

このような固体高分子型の燃料電池のガスケットは、セパレータと電極との接触を行わせつつガスシールを行うため、高い寸法精度か、十分な弾性と十分なガスケット締め代が要求されていた。

このような理由から、従来のガスケットは、樹脂やゴムでできたシート状の平ガスケットやゴムでできたＯリング等が用いられていた。また、最近ではスタックの締結荷重を低下させ、構造部材の軽量化、簡素化、および低コスト化を行うため、ガスケットのシールに必要な荷重を下げる試みも行われている。例えば、Ｏリング形状だけでなく、三角形や半円形状等の断面を持ったガスケットによる構成が試みられている。また、Ｏリング形状等ガスケットにある程度の断面積があるものは、ガスケットをセパレータ側に構成した試みも行われている。

## 【0007】

## 【発明が解決しようとする課題】

電解質膜を挟んでシールするＯリング形状のガスケットでは、Ｏリング部で電解質膜をセパレータに押し付けることでシールを行う。そのためアノード側ガスシールとカソード側ガスシールとの二重ガスシール構成が必要であり、シール部位が大型化する問題があった。また、Ｏリング部が入る溝をセパレータに構成する必要がある、その溝寸法を確保するためセパレータの厚さを薄くできない等の制約があった。そのため積層電池の体積の増大やコスト増、複雑なセパレータ形状が必要であるため、セパレータ加工時の歩留まりの悪化原因になっていた。

## 【0008】

さらに、Ｏリングによるシールの場合、積層電池を組み付ける際、セパレータを下に置き、その上にMEAを置き、その上にセパレータあるいはガスケットとセパレータを重ねるというように、これら部品を積み重ねていく工程がとられる。その際、MEAの上に置くガスケットあるいはセパレータは、組み付け治具のガイドにより組み付けられる。しかし、各部品には寸法誤差があり、特にガスケットとMEAの間のクリアランスを大きくとらなければ、組み付け性を確保できない。そのため、ガスケットと電極との間にクリアランスが生じ、そこを反応ガスが通り、セパレータのガス流路をバイパスすることとなる。

MEAやガスケットの組み付け誤差等で電極とガスケット間のクリアランスは各セル毎にばらつきが生じ、これにより各セル間の圧力損失がばらつきを生じることになる。各セル間に圧力損失のばらつきが生じると、積層電池においては、各セルの圧力損失に見合った反応ガスがそれぞれのセルに流れるため、反応ガスの流量にばらつきが生じる。その結果、電池性能がばらつき、発電電圧の低下、耐久性の低下、低出力運転時の安定性の低下等の弊害が生じる。これらの症状は、反応ガスの利用率が比較的大きいアノード側で顕著であった。

#### 【0009】

また、ガスケットと電極間のクリアランスを少なくしようとすると、部品寸法の精度を向上せねばならず、歩留まりの低下、および部品コストの上昇を招く。さらに、組み付け性が困難であることから、組み付け時の信頼性が低く、シール部に電極の一部が噛み込む等でシール不良が生じたり、電解質膜に過大に引っ張り応力、せん断応力が働き、電解質膜の破損、耐久性の低下等を引き起こす。また、近年電池性能を上げるため、供給するガスの加湿度合いを大きくすることが要求されている。酸化剤ガス側では、反応による生成水もあり、電極から速やか、かつ安定的な水の排出が望まれる。従来型のガスケットにより上記反応ガスのバイパスを防ぐために、ガスケットと電極とのクリアランスを小さくし、あるいはほとんどクリアランスを無くすると、電極からの水の排出に大きな圧力が必要となり、システム効率の低下を招くという問題もある。一方、スタック締結部材の軽量化、コンパクト化、低コスト化のため、シール部締結力の低減も課題であり、簡単な構成で効果的なシール構造が求められている。

#### 【0010】

##### 【課題を解決するための手段】

本発明は、カソードおよびアノードを接合した高分子電解質膜をカソード側セパレータおよびアノード側セパレータで挟む構成の燃料電池において、高分子電解質膜と各セパレータとの間に介在するガスケットの断面形状を、アノード側ガスケットを平面形状とし、カソード側ガスケットをカソードを囲む部分においてカソード側に薄く、反対方向に厚いくさび形状とすることで、安定したシールを可能にするものである。



## 【0011】

本発明の高分子電解質型燃料電池は、高分子電解質膜、前記電解質膜を挟むカソードおよびアノード、カソードに酸化剤ガスを供給するガス流路を有するカソード側セパレータ、並びにアノードに燃料ガスを供給するガス流路を有するアノード側セパレータからなる単位セルを積層したセルスタックを具備し、前記セルスタックが、カソード側セパレータのガス流路に連なる一对のマニホールド孔、およびアノード側セパレータのガス流路に連なる一对のマニホールド孔を有する。この高分子電解質型燃料電池は、さらに、(a) 前記電解質膜とカソード側セパレータとの間に介在し、前記酸化剤ガスの流路およびこれに連なる一对のマニホールド孔を囲むとともに前記燃料ガス用マニホールド孔を囲むカソード側ガスケット、並びに(b) 前記電解質膜とアノード側セパレータとの間に介在し、前記燃料ガスの流路およびこれに連なる一对のマニホールド孔を囲むとともに前記酸化剤ガス用マニホールド孔を囲むアノード側ガスケットを有し、(c) 前記アノード側ガスケットが平板状であり、前記カソード側ガスケットが、前記カソードを囲む部分において、内側が薄く、外側が厚くなる断面をもつくさび型であることを特徴とする。

ここにおいて、カソード側ガスケットの前記くさび型断面を有する部分は、セパレータに接する部分が平面であり、電解質膜側において高低を有する。

## 【0012】

前記カソード側ガスケットは、(1) 前記酸化剤ガスの流路およびこれに連なる一对のマニホールド孔を囲んで閉ループを構成する帯状の第1の部片、(2) 前記一对の燃料ガス用マニホールド孔をそれぞれ囲んで閉ループを構成する一对の帯状の第2の部片、および(3) 第1の部片および第2の部片を連結する帯状の第3の部片からなり、(4) 第1の部片は内側が薄く、外側が厚くなる断面をもつくさび型であり、第2の部片は内側が厚く、外側が薄くなる断面をもつくさび型であることが好ましい。

## 【0013】

## 【発明の実施の形態】

本発明は、高分子電解質膜と各セパレータとの間に介在してシール部を構成す

るガスケットの断面形状を、アノード側ガスケットを平面形状とし、カソード側ガスケットをカソードを囲む部分においてカソード側に薄く、反対方向に厚くさび形状とするものである。

本発明によると、シール部に必要となるスペースを低減するのみならずスタックの締結荷重を低減し、さらには電極とガスケットの間に水排出用兼組み付け性確保のための必要最小限の一定クリアランスを確保することができる。また、セルの組み付けを容易にし、水の低圧損での排出性を確保することが可能となる。

#### 【0014】

また、本発明は、ガスケットの構成が、セパレータのガス流路の構成、および組み付け性からくる限定要件によって決定されるガスケットと電極の間に生じるクリアランスの水力直径（ $d$ ）により定義可能であることを見いだしたことに基づいている。

すなわち、前記カソード側ガスケットの第1の部片とカソードとの間に生じる片側クリアランス  $c_1$  とそのクリアランス部の水力直径  $d$  が次式（1）および（2）を満たすように設計される。

#### 【0015】

$$d < (D \times l \times P) / 0.54L \quad (1)$$

$$0.25\text{ mm} < c_1 \quad (2)$$

ただし、

$l$  : 片側クリアランス部の長さ

$d$  : 片側クリアランス部の水力直径

$L$  : カソード側セパレータの1パス当たりのガス流路の長さ

$D$  : カソード側セパレータの1パス当たりのガス流路の水力直径

$P$  : カソード側セパレータ当たりのガス流路のパス数

水力直径 = 断面積 ÷ 断面積周長 × 4

#### 【0016】

これにより、各部品寸法のばらつき、および組み付け誤差の影響を小さくし、圧力損失のばらつきの少ないセル構成を可能にするガスケットが与えられる。

#### 【0017】

以下、本発明の実施の形態を図面を参照しながら説明する。

図1は本発明による燃料電池のカソード側セパレータの正面図、図2はその平面図、図3はアノード側セパレータの正面図である。

カソード側セパレータ10は、一対の酸化剤ガス用マニホールド孔11、一対の燃料ガス用マニホールド孔12、一対の冷却水用マニホールド孔13、および締結ボルトを通すための4個のボルト孔19を有する。セパレータ10のカソードに対向する面には、一対のマニホールド孔11に連なるガス流路15を有する。セパレータ10は、背面には、一対の冷却水用マニホールド孔13に連なる冷却水の流路14、マニホールド孔13および流路14を囲むシール用ガスケットの溝16、マニホールド孔11および12をそれぞれ囲むシール用ガスケットの溝17および18を有する。セパレータ10は、さらにマニホールド孔13とのバランスを保つため、一対のダミーのマニホールド孔13'を有する。

#### 【0018】

アノード側セパレータ20は、一対の酸化剤ガス用マニホールド孔21、一対の燃料ガス用マニホールド孔22、一対の冷却水用マニホールド孔23、ダミーのマニホールド孔23'、および締結ボルトを通すための4個のボルト孔29を有する。セパレータ20のアノードに対向する面には、一対のマニホールド孔22に連なるガス流路24を有する。セパレータ20は、図示しないが、背面には、カソード側セパレータと同様に、一対の冷却水用マニホールド孔23に連なる冷却水の流路、マニホールド孔23および冷却水の流路を囲むシール用ガスケットの溝、マニホールド孔21および22をそれぞれ囲むシール用ガスケットの溝を有する。

#### 【0019】

カソード側ガスケット50は、図4に示すように、カソード側セパレータ10の一対の酸化剤ガス用マニホールド孔11からガス流路15にわたる部分を囲んで閉ループを構成する細い帯状の部片51、燃料ガス用マニホールド孔12を囲むリング状の部片52、部片52を部片51へ連結する縦の2つの部片58および横の部片54、冷却水用マニホールド孔13およびダミーのマニホールド孔13'をそれぞれ囲む相互につながったリング状の部片53および53'、なら

びに部片 53 および 53' の端部を部片 51 へ連結する帯状部片 57 からなる。ガスケット 50 は、図 6 に示すように、粘着剤の層 61、樹脂フィルム 62 およびゴム層 63 の三層構造である。そして、部片 51 は、内側が薄く、外側が厚くなる断面をもつくさび型である。部片 52、53 および 53' は、内側すなわちマニホールド孔側が厚く、外側が薄い断面を持つくさび型である。また、部片 54、56、57 および 58 は同じくくさび型の断面を有する。厚い方は内側、外側いずれでもよいが、内側が厚く、外側が薄い断面を持つようにするのが好ましい。

#### 【0020】

アノード側ガスケット 80 は、アノード側セパレータ 20 のマニホールド孔 21、22、23、23' および孔 29 にそれぞれ連通するマニホールド孔 81、82、83、83' および孔 89、並びにアノードに対応する切り欠き部 84 を有する。ガスケット 80 は、図 7 に示すように、ガスケット 50 と同様に、粘着剤の層 91、樹脂フィルム 92 およびゴム層 93 の三層構造であるが、全体に同一厚さの平板からなる。

#### 【0021】

カソード側セパレータ 10 は、カソードと対向する面の上に、カソード側ガスケット 50 を粘着剤の層を下にして重ね合わせ、ホットプレスにより圧着する。同様に、アノード側セパレータ 20 は、アノードと対向する面の上に、アノード側ガスケット 80 を粘着剤の層を下にして重ね合わせ、ホットプレスにより圧着する。こうしてガスケットを接合したカソード側セパレータおよびアノード側セパレータをそれぞれ図 8 および図 9 に示す。

#### 【0022】

ガスケットに使用するゴム層については、フッ素ゴムの他ポリイソプレン、ブチルゴム、エチレンプロピレンゴムなどを使用することができる。粘着剤は、ポリイソブチレン、エチレンプロピレンゴム、ブチルゴム、それらの複合品などを使用することができる。

#### 【0023】

これらガスケットを接合したセパレータにより、高分子電解質膜およびこれを

挟む一对の電極からなるMEAを挟んで単電池を構成する。隣接する単電池間には、カソード側セパレータとアノード側セパレータの背面同士の接合部に冷却部を設ける。前記のセパレータ間には、図2に示す溝16、17および18に対応する部分にOリングを詰め込む。この組み立て手順を以下に説明する。

まず、ガイドピンを立てた組み立て用治具をセットし、その上にガスケットが付いたアノード側セパレータを置く。次に、MEAをガイドピンに沿ってセットする。その際アノードのガス拡散層がガスケット80の切り欠き部84の縁部に乗り上げないように慎重に組み付ける。

治具にセットされたガイドピンと、組み付けるそれぞれの部品との間にはクリアランスがある。特に、MEAは組み立てる環境の湿度により大きく寸法が変化するため、クリアランスは大きくとる必要がある。MEAを安定的に組み付けるには、ガイド部のクリアランスは1mm必要である。

#### 【0024】

MEAをセットした後に、カソード側セパレータ10を組み付ける。セパレータは不透明であるため、MEAのカソードのガス拡散層とガスケットが接する様子を直接観察できないため、ガイドピンにしたがって組み付けを行う。この際、MEAのカソードのガス拡散層がカソード側ガスケット50の中心にセットされることが望ましい。しかし、治具のクリアランス、MEAの寸法誤差、セパレータの寸法誤差の集積により位置ずれが発生する。

従来の平板状のガスケットであれば、想定される位置ずれの上限付近では、ガス拡散層がガスケットに乗り上げ、シール性を確保できない。組み付け性を向上させるため、クリアランスを大きくとれば、ガスがそのクリアランスを通り電極に供給されなくなる。

#### 【0025】

一方、本発明によるくさび形状断面のガスケットを用いた場合は、寸法ずれによりガスケット50の低い部位63Lにガス拡散層が少し乗り上げても、くさび形状の高い部位63Hによってシールが行われるため、ガスケット50の部片51の外側へのガス漏れはなく、シール性は確保可能となる。さらに、ガスケットがくさび型であるために、ガスケットとガス拡散層とのクリアランスは、セパレ

ータの平面方向には大きく取れるものの、高さ方向には小さく抑えることができる。従って、ガスの吹き抜けによる発電性能の低下も起こらない。

以上の説明から明らかなように、部片 51 のうち、カソードを囲む部分、すなわち図 4 に斜線で示した部分において、内側が薄く、外側が厚くなる断面をもつくさび型であることが必要である。部片 51 のその他の部分は、内側、外側いずれが薄くなるようなくさび型でもよいが、電極を囲む部分と同じように、内側が薄く、外側が厚くなる断面をもつのが好ましい。

#### 【0026】

本発明によるガスケットを用いた電池の組み立ては、上記のように、ガイドピンを有する治具上に、まずガスケットを接合したアノード側セパレータを置き、次いで、MEA をガイドピンに沿ってセットし、しかる後にカソード側セパレータを組み付けるという手順をとる。この手順によれば、アノードのガス拡散層がガスケット 80 の切り欠き部 84 の縁部に乗り上げないよう目視により慎重に組み付けることができる。こうして反応ガスの利用率が大きなアノード側における組み付け誤差による圧力損失のばらつきを少なくすることができる。一方、カソード側では、組み付けに際して、カソードのガス拡散層とガスケットが接する様子を直接観察できないが、くさび型断面のガスケットを用いることにより、組み付け誤差によるガス漏れを阻止することができる。

#### 【0027】

##### 【実施例】

以下、本発明の実施例によりさらに詳しく説明する。

##### 《実施例 1》

アセチレンブラック系カーボン粉末に、平均粒径約 30 Å の白金粒子を 25 重量%担持した。この触媒粉末とパーフルオロカーボンスルホン酸粉末のエタノール分散液を混合し、厚み 250 μm のカーボン不織布の一方の面に塗布、乾燥し、電極触媒層を形成した。形成後の電極中に含まれる白金量は 0.5 mg/cm<sup>2</sup>、パーフルオロカーボンスルホン酸の量は 1.2 mg/cm<sup>2</sup>とした。

このようにして作製した同じ構成のカソードとアノードを、これら電極より一回り大きい面積を有する水素イオン伝導性高分子電解質膜の中心部の両面に、印

刷した触媒層が電解質膜側に接するようにホットプレスによって接合して、電解質膜電極接合体 (MEA) を作製した。水素イオン伝導性高分子電解質膜として、パーフルオロカーボンスルホン酸を  $175\ \mu\text{m}$  の厚みに薄膜化したものを用いた。電解質膜のサイズは後述するセパレータのサイズと同じとし、電解質膜には後述する燃料ガス用、冷却水用、および酸化剤ガス用の各マニホールド孔に対応する孔を打ち抜き型により加工した。

#### 【0028】

本実施例で作製した燃料電池の各構成要素の構造を以下に説明する。

カソード側セパレータ 10 およびアノード側セパレータ 20 は、厚さ  $3\text{mm}$  の気密な等方性黒鉛板に機械加工によりガス流路、マニホールド孔を形成して、上記に説明した構造に作製した。ガス流路および冷却水の流路は、溝幅  $1.5\text{mm}$ 、ピッチ  $3\text{mm}$  である。酸化剤ガスの流路は並行する 7 本の溝、燃料ガスの流路は並行する 4 本の溝、また冷却水の流路は並行する 6 本の溝からそれぞれ形成されたサーペンタイン型である。

#### 【0029】

次に、アノード側ガスケット 80 は、片側に  $25\ \mu\text{m}$  のブチルゴムからなる粘着剤層 91 を有する、厚さ  $100\ \mu\text{m}$  のポリイミドフィルム 92 上に、 $125\ \mu\text{m}$  のフッ素ゴムの層 93 を成形したシートを用いた。このシートにマニホールド孔、締結用ボルト孔、および電極に対応する部位を抜き型で抜いてガスケットを作製した。電極に対応する箇所 (切り欠き部 84) の寸法は、電極部とのクリアランスが片側で  $0.25\text{mm}$  となるようにした。

#### 【0030】

カソード側ガスケット 50 は、片側に  $25\ \mu\text{m}$  のブチルゴムからなる粘着剤層 61 を有する、厚さ  $100\ \mu\text{m}$  のポリイミドフィルム 62 の上に、幅が  $3\text{mm}$ 、高い方の高さが  $300\ \mu\text{m}$ 、薄い方の高さが  $50\ \mu\text{m}$  のくさび型断面形状を持つフッ素ゴム 63 をシールが必要な箇所を囲むように成形した。すなわち、実施の形態で説明したように、部片 51 は、内側が薄く、外側が厚くなる断面をもつようにした。また、部片 52、53 および 53' は、内側が厚く、外側が薄くなるようにした。このシートは、その後、フッ素ゴムが成形されたポリイミドフィル

ムに、マニホールド孔、締結用ボルト孔、電極に対応する部位を抜き型で抜いて作製した。電極に対応する個所の寸法は、電極部とのクリアランスが片側で0.25 mmとなるようにした。ポリイミドフィルムへのフッ素ゴムの成形は、金型にポリイミドフィルムをセットして金型を締め、温度200℃、射出圧力150 kgf/cm<sup>2</sup>でフッ素ゴムを成型し、二次架橋は200℃で10時間行った。その後、ブチルゴム粘着剤層をポリイミドフィルムに転写接合し、粘着剤層の面はポリプロピレン製の離型フィルムでカバーした。

こうして作製したガスケット50および80をそれぞれセパレータ10および20にセットし、ホットプレスによりガスケットをセパレータに圧着させた。このとき温度は100℃、プレス荷重は2000 kgf、加圧時間は1分であった。

#### 【0031】

次に、上記に説明したように、ガイドピンを立てた組み立て用治具を準備し、そのガイドピンに沿ってアノード側セパレータ、MEA、カソード側セパレータに順に組み付け、単電池を50セル積層した。MEAの電極面積は100 cm<sup>2</sup>である。このセルスタックを、集電板および絶縁板を介してステンレス鋼製の端板で挟み、締結ロッドにより700 kgfの締結荷重で締結した。このとき感圧紙でMEAとセパレータの締結面圧を確認した結果、MEAにかかる面圧は10 kgf/cm<sup>2</sup>であった。この結果、ガスケットでの反力は200 kgfであることがわかった。

#### 【0032】

このようにして作製した積層電池についてガスのリークチェックを行った。酸化剤ガス側、燃料ガス側、冷却水側共にガスリークはなく、積層電池としての流体シール性に問題のないことが確認された。このときのリークチェックは、流路の出口側マニホールドを締め切り、入口側マニホールドからHeガスを0.5 kgf/cm<sup>2</sup>の圧力で流入させ、そのときの流入ガス流量で評価した。

#### 【0033】

比較例として、従来の平板状のガスケットを酸化剤ガス側のシールに用いた例を説明する。酸化剤ガス側のガスケットが平板になった以外は上述の構成と同じ



である。実施例と同様に組み立て治具を用いて単電池を50セル積層した後、同様にリークチェックを行った。締結荷重は2000 kgfでMEAにかかる面圧が10 kgf/cm<sup>2</sup>であったため、締結は2000 kgfで行った。その結果、一部のセルにおいてガスの外部へのリークや酸化剤ガス側から燃料ガス側へのクロスリーク、あるいはその両方が発生し、シール不良が生じた。リークチェック条件は実施例と同じである。

#### 【0034】

この試験を実施後、実施例の電池と比較例の電池を分解したところ、両電池ともにMEAのカソード側ガス拡散層がカソード側ガスケットの中心から多少ずれて組み付けられていた。実施例の電池では、シールする部位がガスケットのくさび型断面の高い部位によって行われているため、多少ガスケットにガス拡散層が乗り上げても、組み付け時のガス拡散層のずれ範囲ではシール性が確保可能であることがわかった。一方、比較例の電池では、同様にガス拡散層とガスケットがずれていたが、平板状のガスケットでは、一部でもガス拡散層がガスケットに乗り上げるとシール性が損なわれ、シール不良を招いていることがわかった。

#### 【0035】

次に、上記比較例の電池のシール不良を起こしているセルを取り除き、リークチェックにより正常動作が可能な30セルを選び、その30セルの積層電池を作製した。これと本実施例の50セル積層電池について電池性能を以下のようにして評価した。

これら本実施例の電池および比較例1の燃料電池を75℃に保持し、70℃の露点となるよう加湿・加温した水素ガスをアノードに、60℃の露点となるよう加湿・加温した空気をカソードにそれぞれ供給した。その結果、両電池とも電流を外部に出力しない無負荷時には、本実施例の電池では50V、比較例の電池では30Vの電池開放電圧を得た。クロスリーク、ショート等の不具合がないことが確認された。

#### 【0036】

これらの電池を燃料利用率80%、酸素利用率40%、電流密度0.3 A/cm<sup>2</sup>で発電を開始させた。そして、燃料ガスの加湿を露点70℃と一定にし、空

気の加湿を 60℃から 5℃刻みで変更し、各条件で 24 時間発電させた。各電池の電圧の安定性を図 11 に示す。比較例 1 の積層電池は、酸化剤ガス側の露点が 70℃以上の条件で出力電圧が不安定となり、75℃の露点では出力電圧の低下が確認された。これに対し本実施例の電池は、75℃の露点まで安定した出力電圧が確認された。酸化剤ガス側の圧力損失は、比較例 1 の電池は本実施例の電池に比較し 5% 高く、70℃以上の露点では圧力損失の振動が確認された。

上で評価した積層電池を分解してセパレータのガス流路を確認したところ、比較例 1 の電池では、カソード側セパレータのガス流路には本実施例の電池に比較して多くの水滴が存在していた。

#### 【0037】

次に、比較例 1 の電池におけるカソード側ガasket とガス拡散層とのクリアランスを片側 0.25 mm から 1.0 mm に拡大した電池を作製した。ガス拡散層とガasket とのクリアランスを拡大した以外は、比較例 1 の電池と同じ構成の 30 セル積層の電池を作製した。これを比較例 2 の電池とする。

この電池を上記と同じ条件で評価したところ、電池開放電圧は 3.0 V であり、酸化剤ガスの露点を変化させた出力特性は、図 12 に示す結果を得た。比較例 2 の電池は、比較例 1 の電池に比べて露点 75℃まで安定した出力電圧が確認された。ただし、安定した条件での出力電圧の絶対値は、比較例 1 より低いものであった。酸化剤ガス側の圧力損失の振動は見られなかった。

比較例 2 の電池を評価後分解し、カソード側セパレータのガス流路を観察したところ、本実施例と同等な水滴の存在状況であった。

#### 【0038】

固体高分子電解質型燃料電池では、カソード側で発電に伴う生成水が発生する。電池を安定的に発電させるためには、生成水を速やか、かつ安定的に排出することが重要である。生成水の排出が安定的でないと、反応ガスの供給が不安定となり、出力電圧が変動する。また、最悪の場合、反応ガスが供給されないために、電池が転極を引き起こし、電池の不可逆劣化を引き起こすこともある。本実施例と比較例 1 および 2 の評価、分析結果から、カソード側のガス拡散層とガasket 周囲とのクリアランスが生成水の排出に有効であり、安定した出力電圧を得

る効果があることがわかった。

ただし、クリアランスが大きすぎると、電極反応に寄与しないガスの吹き抜けが大きくなり、出力電圧自体が低下することも確認された。その点、本実施例の電池は、必要かつ性能低下を引き起こさないクリアランスをカソード側に確保するに好適であることが確認された。

本実施例で用いたくさび型断面をもつシール方式は、Oリングを用いたシール方式に比較し、Oリングを嵌合する溝の必要性がないため、その分セパレータの厚さを薄くし、積層電池をコンパクトにできることは言うまでもない。

#### 【0039】

##### 《実施例2》

実施例1と同じMEA、ガスケットおよびセパレータを用い、実施例1と同様にして20セル積層した。ただし、電極とガスケットの間の片側クリアランスが表1に示すように5つのパターンのセルスタックを作製した。それぞれのパターンのセルスタックの組み付け性を表2に示す。

#### 【0040】

【表1】

	パターン1	パターン2	パターン3	パターン4	パターン5
電極～ガスケット 片側クリアランス	0.1mm	0.2mm	0.25mm	0.35mm	0.5mm

#### 【0041】

以上の各セルスタックを集電板と絶縁板を介してステンレス製の端板で挟み、締結ロッドにより2000kgfの締結荷重で締結した。このとき感圧紙でMEAとセパレータの締結面圧を確認した結果、MEAにかかる面圧は10kgf/cm<sup>2</sup>であった。

このようにして作製した積層電池についてガスのリークチェックを行った。リークチェックは、流路の出口側マニホールドを締め切り、入口側マニホールドからHeガスを0.5kgf/cm<sup>2</sup>の圧力で流入させ、そのときの流入ガス流量で評価した。また、リークチェック後の積層電池を分解した。これらの結果も表2に示す。

## 【0042】

【表2】

	パターン1	パターン2	パターン3	パターン4	パターン5
組付性	×	△	○	○	○
リーク チェック	×	×	○	○	○
分解後 観察結果	ガス拡散層 乗り上げ	ガス拡散層 乗り上げ	異常無し	異常無し	異常無し

## 【0043】

この結果より、組み付け性、シールの信頼性の観点から、ガスケットとガス拡散層とのクリアランスはパターン3以上、すなわち片側クリアランス(c1)が0.25mm以上必要であることがわかる。パターン3の電池を実施例1と同様の条件で評価したところ、電池開放電圧で20Vが得られ、クロスリーク、ショート等の問題がないことが確認された。さらに、酸化剤ガス側の露点を変えた場合の出力電圧特性は、露点75℃まで安定した高い出力電圧14V(単位セル当たり0.7V)を得ることが確認された。

## 【0044】

次に、セパレータの流路のパターンの違いと、ガス拡散層とガスケット間のクリアランスのパターンの違いで、単電池の圧力損失ばらつきを評価した。加工方法、ガスケットの作製方法、組み立て方法、電池部材構成は上述の方式と同様である。評価を行った組み合わせを表3に示す。圧力損失のばらつきは、常温で反応ガス利用率を40%としたドライ窒素ガスをマニホールドから供給し、入口マニホールドと出口マニホールド間の圧力損失を計測した。評価結果を表4および図13に示す。

## 【0045】

【表 3】

		パターン1	パターン2	パターン3	パターン4	パターン5	パターン6
ガス 流路	パス数 P	7	2	3	1	6	2
	流路長 L	1080mm	3717mm	2451mm	2270mm	450mm	1260mm
	流路断面の 水力直径 D	1mm	1mm	1mm	0.73mm	0.82mm	0.7mm
	$(L/D/P) \times 2$	309	3717	1634	6219	183	1800
ガス拡散層 ガスケット間 クリアランス	クリアランス部長さ l	0.244m	0.244m	0.244m	0.12m	0.12m	0.12m
	クリアランス部断面 の水力直径 d	0.374mm	0.272mm	0.272mm	0.299mm	0.25mm	0.25mm
	$l/d$	652	898	898	402	480	480
$(l/d) / [(L/D/P) \times 2]$		2.1	0.24	0.55	0.06	2.6	0.27

【0046】

【表 4】

	パターン1	パターン2	パターン3	パターン4	パターン5	パターン6
組付性	○	○	○	○	○	○
リークチェック	○	○	○	○	○	○
圧力損失ばらつき ( $\Delta$ kPa)	0.5	7	1	10	0.5	1.5
評価	○	△	○	×	○	○

【0047】

図13は、ガス流路と、ガス拡散層とガスケット間に生じるクリアランスの関係と、圧力損失のばらつき幅に着目して整理した値のグラフである。パラメータは、カソード側セパレータのガス流路の長さ (L)、ガス流路の断面積の水力直径 (D)、ガス流路のパス数 (P)、クリアランス部の断面積の水力直径 (d)、クリアランス部の長さ (l) で規定される値の比を考案し整理した。その結果、図13に示すように、その値が0.27を境に急激に減少する傾向を有することがわかった。

【0048】

図10はガス拡散層とガスケット間に生じるクリアランス部を示すモデルである。高分子電解質膜3を挟むカソード1およびアノード2の外周に、それぞれカ

ソード側ガスケット 50 およびアノード側ガスケット 80 が位置する。これらをカソード側セパレータ 10 とアノード側セパレータ 20 で挟んでいる。カソード 1 とガスケット 50 間のクリアランスが  $l_1$  で、アノード 2 とガスケット 20 間のクリアランスが  $l_2$  で示されている。カソード 1 とガスケット 50 間のクリアランス部が S で示されている。カソード側の水力直径は、次式で表される。

$$\text{水力直径} = (\text{面積 } S) \div (\text{正方形のカソードの一片の長さ}) \times 4$$

#### 【0049】

図 14 は、圧力損失ばらつきをもった単電池を 50 セル積層した電池の出力電圧特性を示す。この積層電池は、実施例 1 と同じセパレータを用い、ガスケットは平板状のものを用いた。ガス拡散層とガスケット間のクリアランスを調整して圧力損失のばらついた単電池を選別し、積層電池として組み上げた。その他の部材の構成は実施例 1 と同じである。比較例として、圧力損失ばらつきが 0.5 kPa 以内に収まっている 50 セルの積層電池の出力電圧特性も併記した。比較例の結果より、圧力損失ばらつきが少ない場合には、出力電圧は各単電池でそろっており、ばらつきが少ないことが確認された。このことから、この積層電池のマニホールド構成およびガスフロー構成が各単電池に反応ガスを等分配することに問題がないことが確認された。

#### 【0050】

圧力損失ばらつき幅が 1.5 kPa 付近を境にそれ以上増加した場合、出力電圧の低下が確認された。これは、積層電池内で圧力損失にばらつきがあるため、反応ガス分配に差が生じ、反応ガスの流量が少ないセルの発電能力が低下したことに起因するものである。すなわち、積層電池内に組み込む単電池の圧力損失ばらつきを 1.5 kPa 以内の収めることが積層電池性能の高出力化、安定化に有効であることが確認された。

積層電池での出力電圧特性と圧力損失ばらつきの関係、および上で考察したパラメーター（流路長さと流路断面積の水力直径、流路パス数とクリアランス部の断面積の水力直径とクリアランス部の長さで規定される値の比）すなわち（ $(l/d)/(L/D/P \times 2)$ ）と単位電池での圧力損失ばらつきの関係から、以下の式（3）を満足するクリアランスを確保することが重要であることを見出

した。

【0051】

$$0.27 < (l/d) / (L/D \times 2/P) \quad (3)$$

【0052】

この式よりガスケットとガス拡散層間のクリアランスの水力直径  $d$  は、式 (1) を満たすことが必要であると定義される。

【0053】

$$d < (D \times l \times P) / 0.54L \quad (1)$$

【0054】

本実施例の結果より、ガスケットとガス拡散層間の片側クリアランス  $c_1$  は、組み付け性、シール信頼性の観点から 0.25 mm 以上必要であり、積層電池の高出力化、安定化のために、片側クリアランスの水力直径  $d$  は式 (1) を満足するクリアランスを確保することが重要である。

【0055】

上記項目を満足する構成は、形状を問わないが、実施例 1 で適用したくさび断面をもつガスケットの構成が好適であり、かつこれをカソード側ガスケットに用いることが好適であった。

【0056】

【発明の効果】

本発明によれば、くさび型の断面をもつガスケットと平板状ガスケットの組み合わせにより、安定したシール、電池の安定運転および締結力の低減を可能にし、これによってスタック構成部品のコンパクト化、シールスペースのコンパクト化、従ってセパレータの薄型化が可能となる。本発明によれば、燃料電池の信頼性の向上、量産時の歩留まりの向上、コンパクト化、および大幅なコスト低減が図れる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明の一実施例におけるカソード側セパレータの正面図である。

【図 2】

同カソード側セパレータ板の背面図である。

【図 3】

本発明の一実施例におけるアノード側セパレータの正面図である。

【図 4】

本発明の一実施例におけるカソード側ガasketの正面図である。

【図 5】

本発明の一実施例におけるアノード側ガasketの正面図である。

【図 6】

同カソード側ガasketの図 4 のV-V線断面図である。

【図 7】

同アノード側ガasketの要部の断面図である。

【図 8】

ガasketを組み合わせたカソード側セパレータの正面図である。

【図 9】

ガasketを組み合わせたアノード側セパレータの正面図である。

【図 10】

ガasket拡散層とガasket間に生じるクリアランス部を示すモデル図である。

【図 11】

本発明の実施例 1 および比較例 1 の燃料電池の出力電圧特性を示す図である。

【図 12】

本発明の実施例 1 と比較例 2 の燃料電池の出力特性を示す図である。

【図 13】

本発明によるセパレータとガasketを規制するパラメーターと圧力損失ばらつきとの関係を示す図である。

【図 14】

本発明の実施例 2 と比較例 2 の燃料電池の出力特性を示す図である。

【符号の説明】

- 1 カソード
- 2 アノード



### 3 高分子電解質膜

10 カソード側セパレータ

11、21 酸化剤ガス用マニホールド孔

12、22 燃料ガス用マニホールド孔

15 酸化剤ガスの流路

24 燃料ガスの流路

20 アノード側セパレータ

50 カソード側ガasket

80 アノード側ガasket

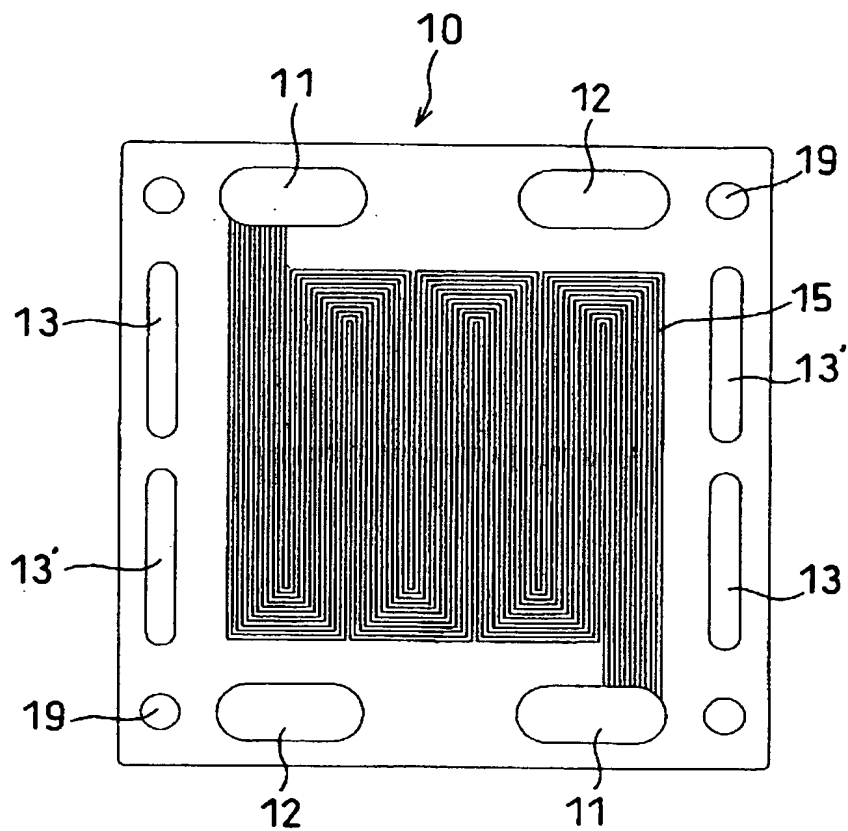
51 帯状の第1の部片

52 帯状の第2の部片

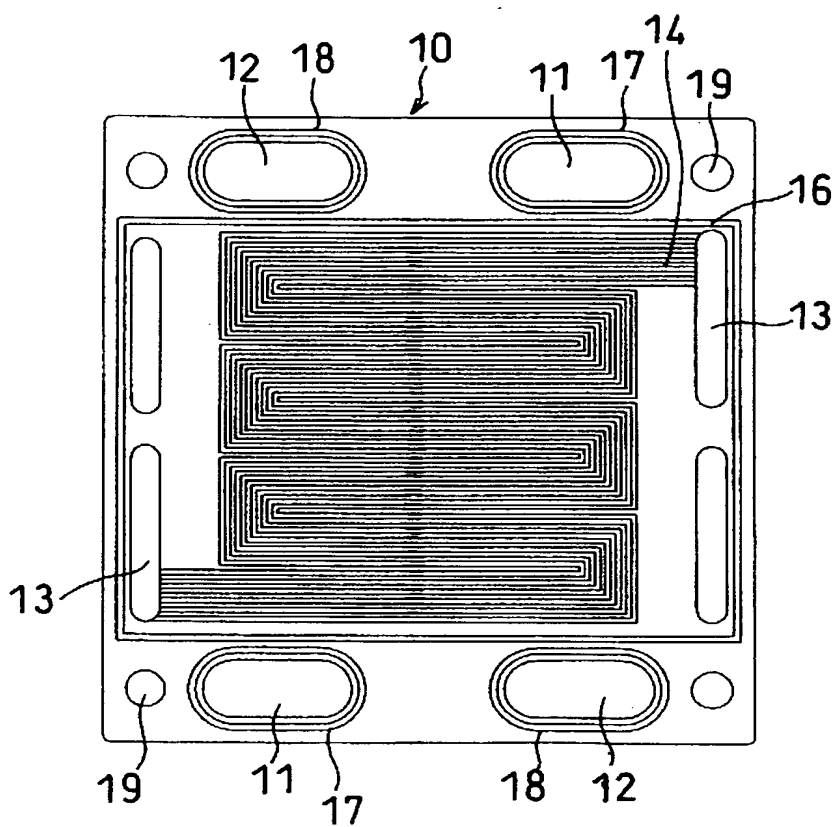
54、58 帯状の第3の部片

【書類名】 図面

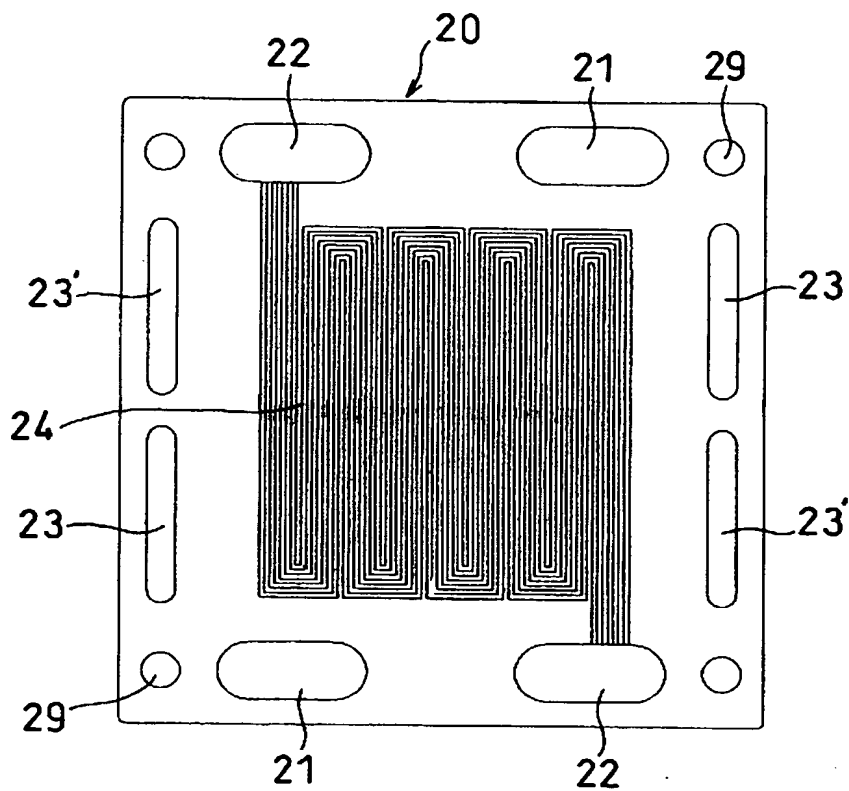
【図 1】



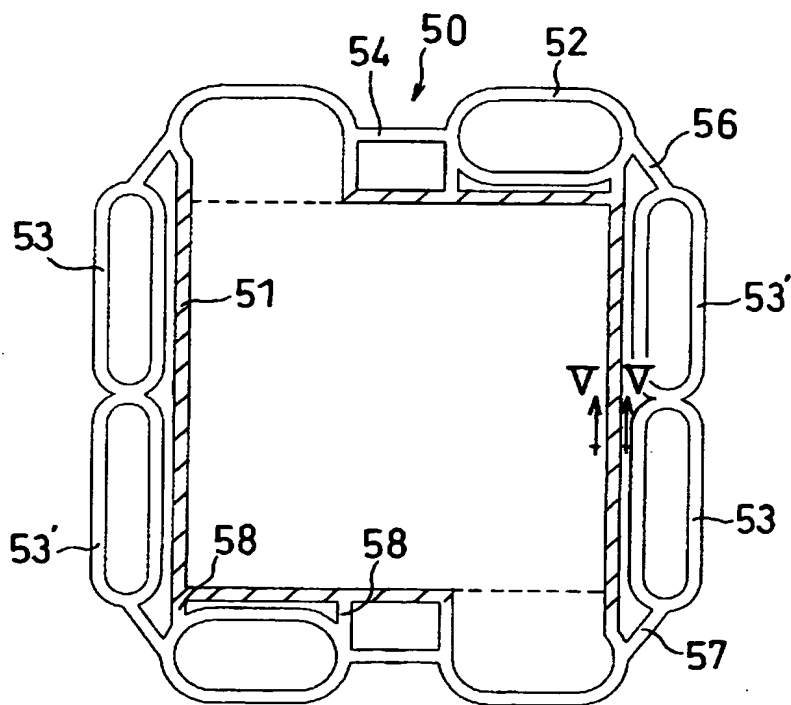
【図 2】



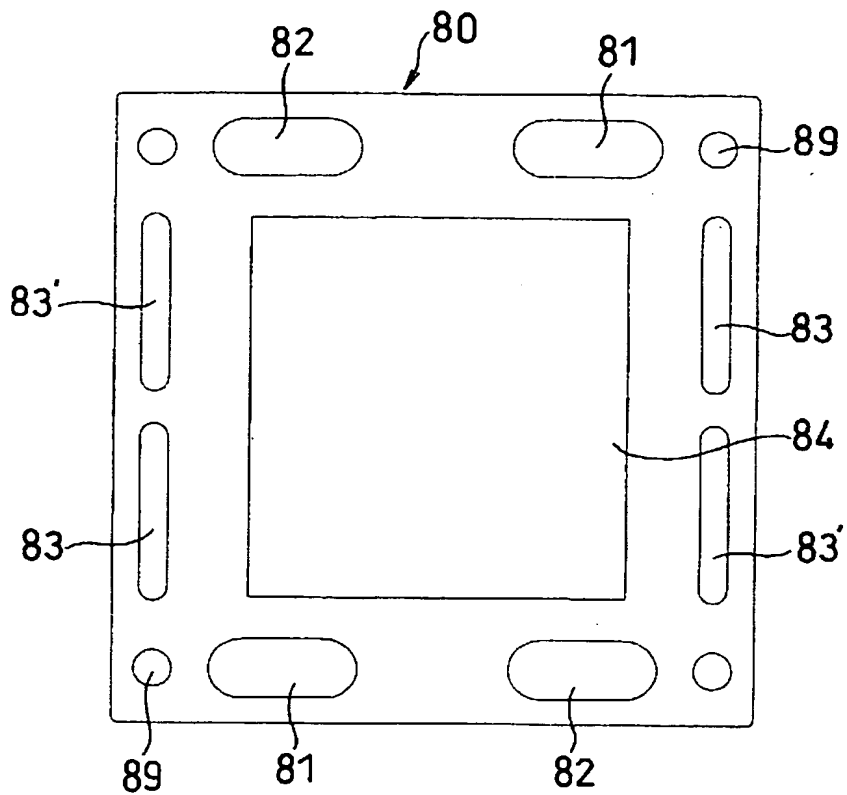
【図 3】



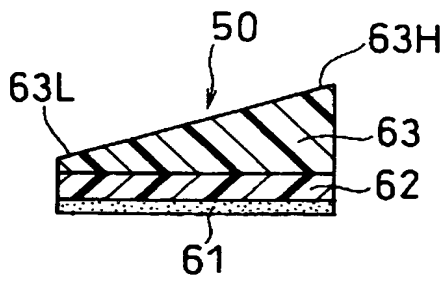
【図 4】



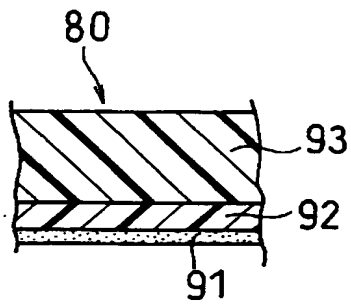
【図 5】



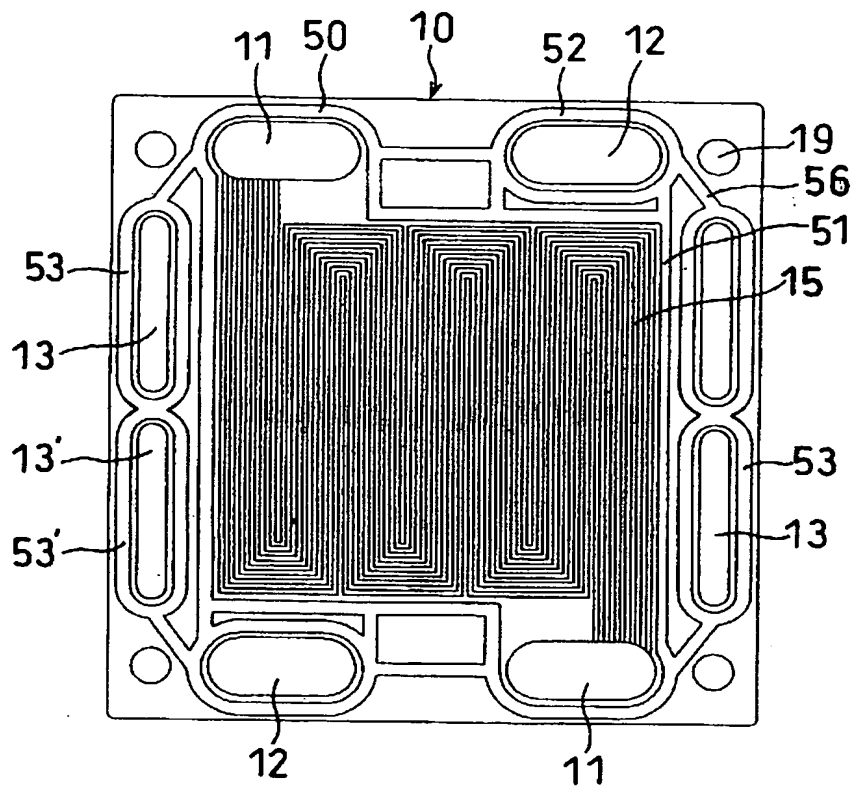
【図 6】



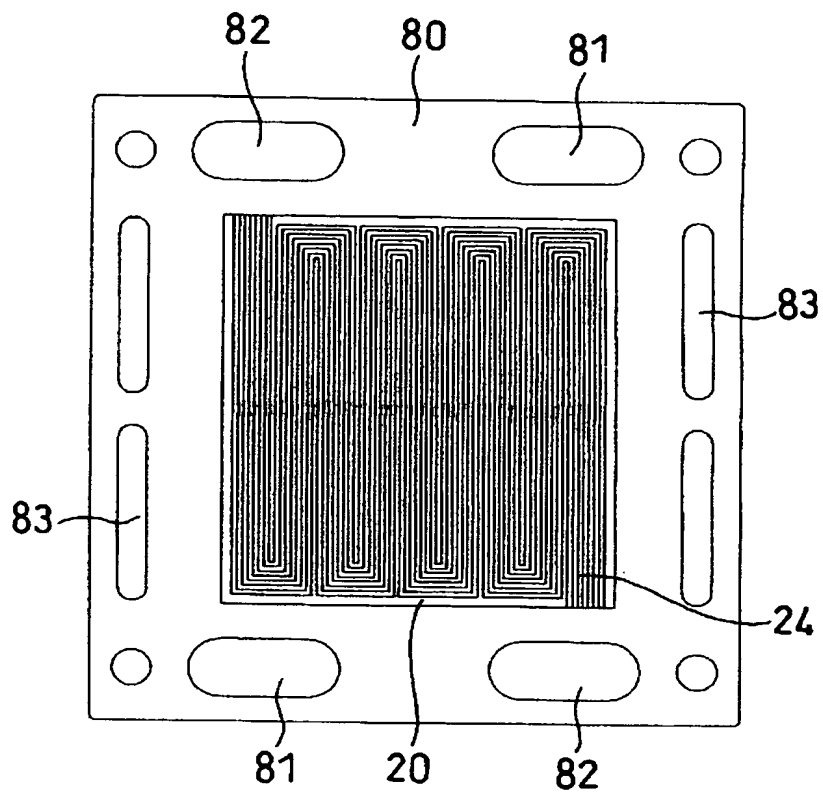
【図 7】



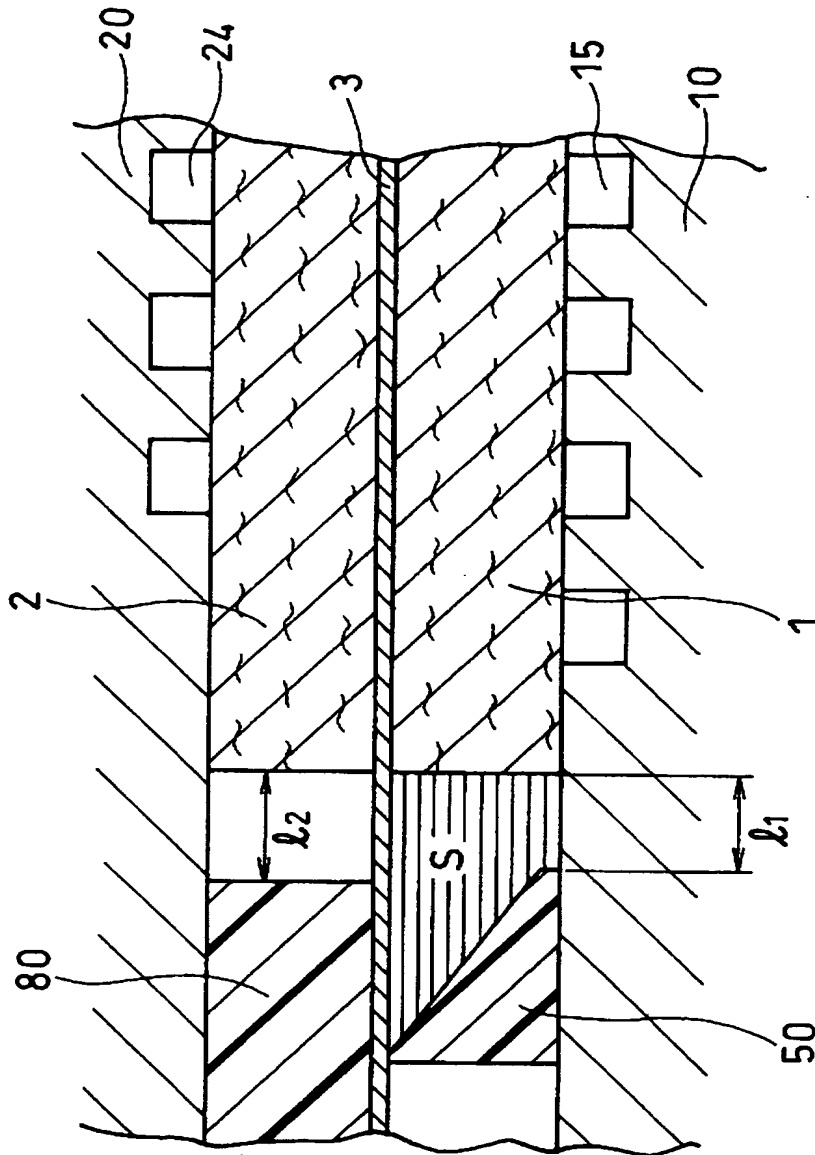
【図 8】



【図 9】

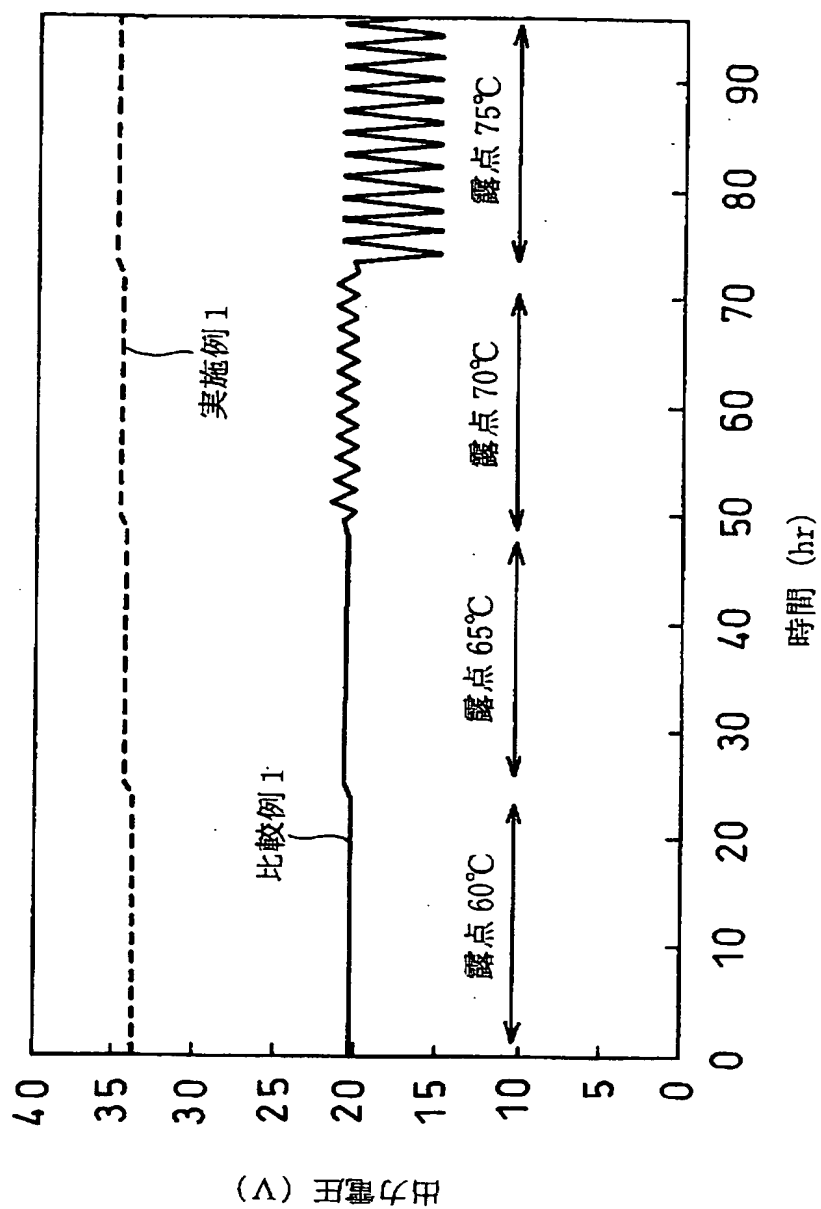


【図10】

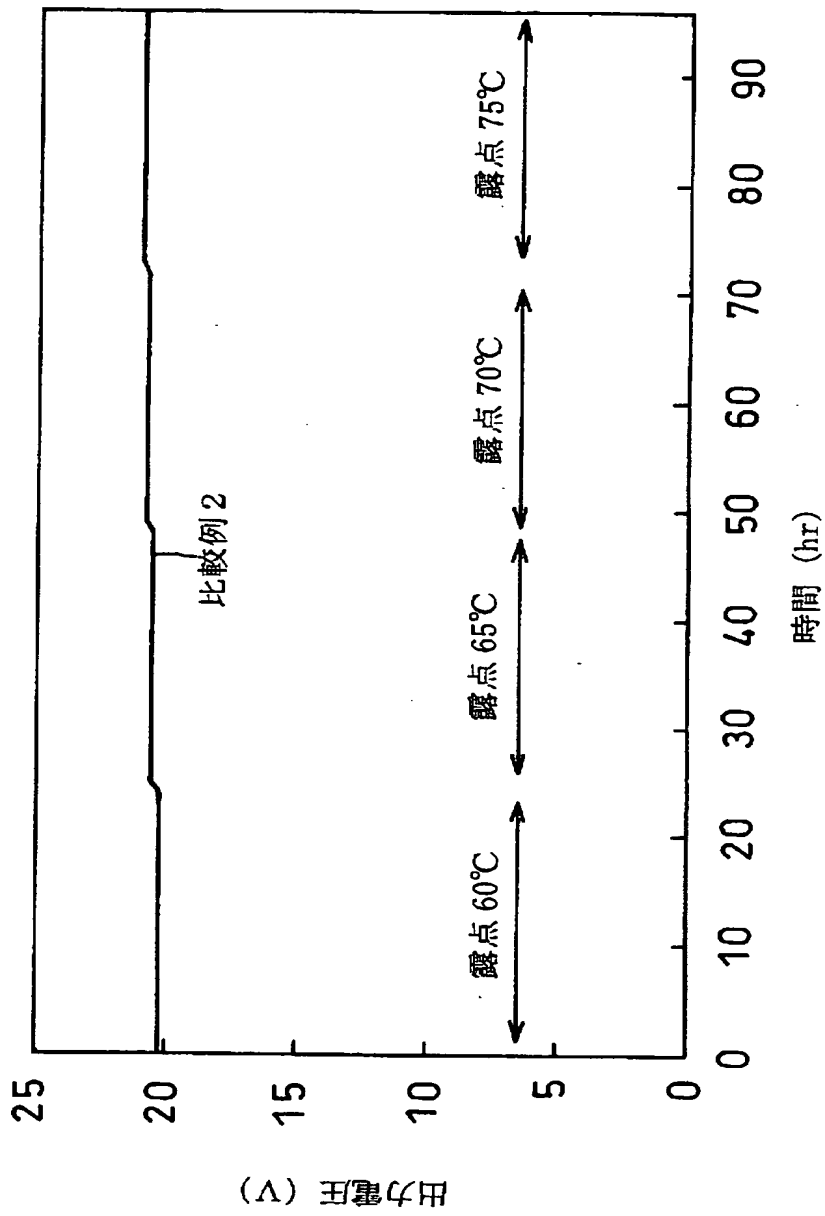




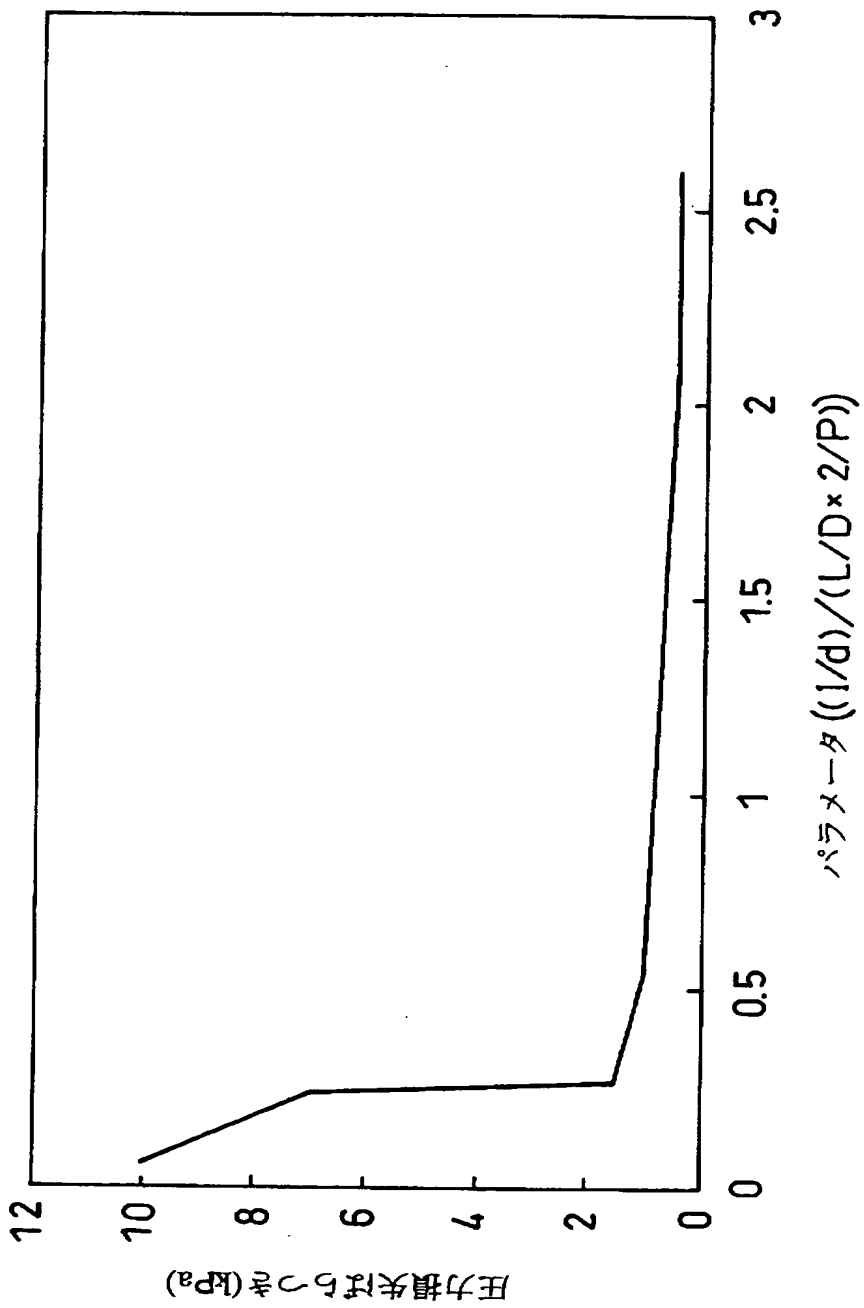
【図 11】



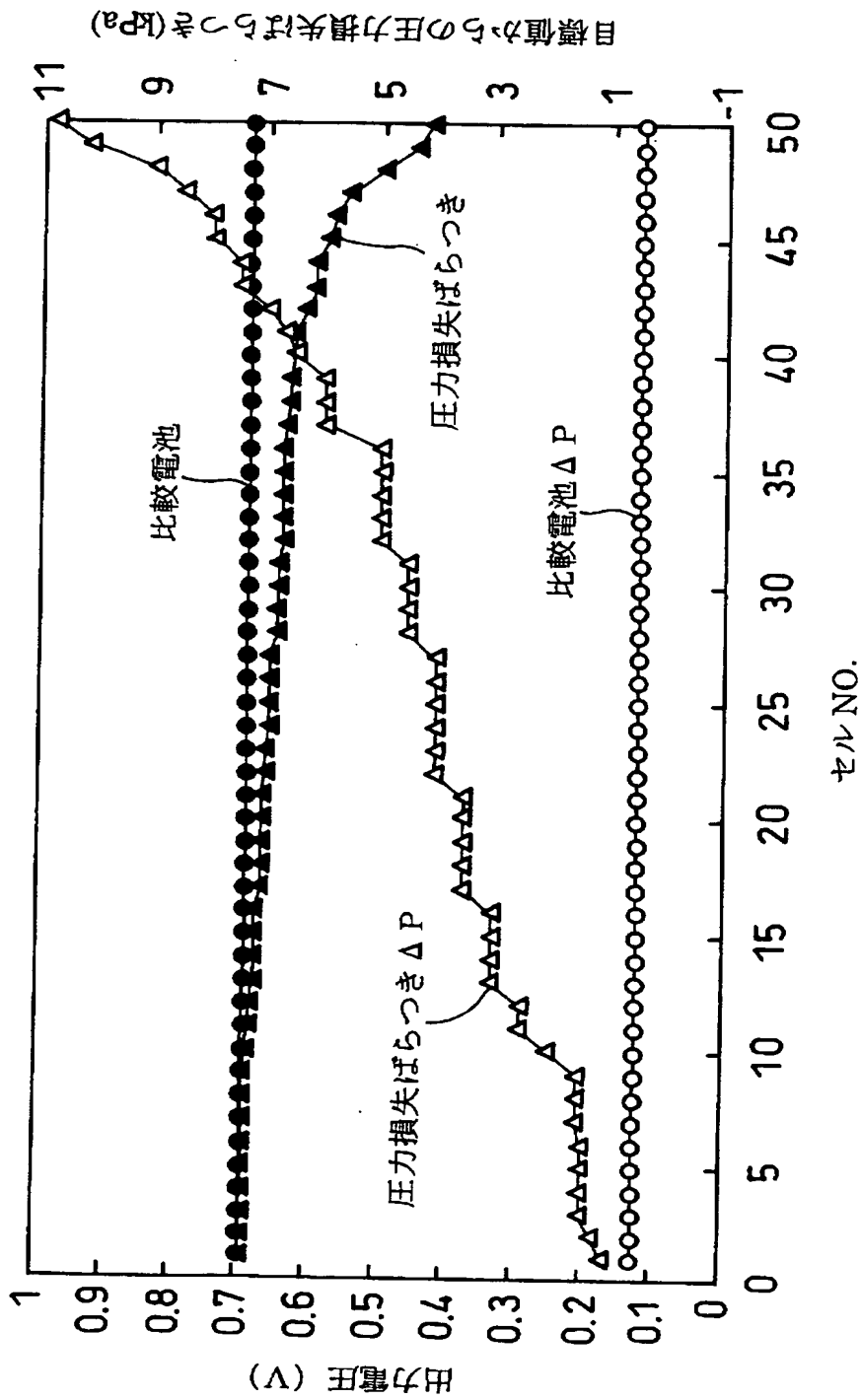
【図 12】



【図 13】



【図 14】



【書類名】 要約書

【要約書】

【課題】 ガスシール部の信頼性を向上するとともに電池の組み付けを容易にする。

【解決手段】 カソードおよびアノードを接合した高分子電解質膜をカソード側セパレータおよびアノード側セパレータで挟む構成の燃料電池において、高分子電解質膜と各セパレータとの間に介在するガスケットの断面形状を、アノード側ガスケットを平面形状とし、カソード側ガスケットをカソードを囲む部分においてカソード側に薄く、反対方向に厚いくさび形状とすることで、安定したシールを可能にする。

【選択図】 図 10

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2003-070358
受付番号	50300423982
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0094
作成日	平成15年 3月17日

<認定情報・付加情報>

【提出日】 平成15年 3月14日

次頁無

特願 2 0 0 3 - 0 7 0 3 5 8

出 願 人 履 歷 情 報

識別番号

[ 0 0 0 0 0 5 8 2 1 ]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 2 8 日

[変更理由]

新規登録

住 所

大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地

氏 名

松下電器産業株式会社